

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE



In re the Application of:

Manabu IWAIDA et al.

Attorney Docket Number: 107355-00096

Application Number: 10/721,754

Confirmation Number: 3937

Filed: November 26, 2003

Group Art Unit: 1771

For: GRANULES FOR FORMATION OF AN ELECTRODE OF AN ELECTRIC DOUBLE LAYER CAPACITOR, MANUFACTURING METHOD THEREOF, ELECTRODE SHEET, POLARIZED ELECTRODE, AND ELECTRIC DOUBLE LAYER CAPACITOR USING A POLARIZED ELECTRODE

CLAIM FOR PRIORITY

Commissioner for Patents
P.O. Box 1450
Alexandria, Virginia 22313-1450

Date: May 10, 2004

Sir:

The benefit of the filing date of the following prior foreign applications filed in the following foreign country is hereby requested for the above-identified patent application and the priority provided in 35 U.S.C. §119 is hereby claimed:

Japanese Patent Application Number 2002-347939 filed on November 29, 2002
Japanese Patent Application Number 2002-349229 filed on November 29, 2002

In support of this claim, certified copies of said original foreign applications are filed herewith.

It is requested that the file of this application be marked to indicate that the requirements of 35 U.S.C. §119 have been fulfilled and that the Patent and Trademark Office kindly acknowledge receipt of this document.

Please charge any fee deficiency or credit any overpayment with respect to this paper to Deposit Account Number 01-2300.

Respectfully submitted,

Charles M. Marmelstein
Registration Number 25,895

Customer Number 004372
ARENT FOX PLLC
1050 Connecticut Avenue, NW
Suite 400
Washington, DC 20036-5339
Telephone: (202) 857-6000
Fax: (202) 638-4810

CMM:vmh

Enclosures: Priority Documents (2)

日本国特許庁
JAPAN PATENT OFFICE

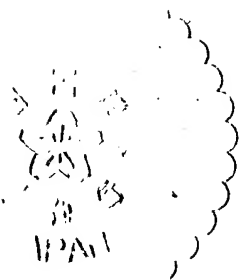
別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日 2002年11月29日
Date of Application:

出願番号 特願2002-347939
Application Number:
[ST. 10/C]: [JP 2002-347939]

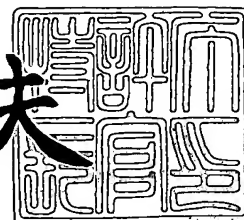
出願人 大同メタル工業株式会社
Applicant(s): 本田技研工業株式会社



2003年12月25日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

今井康夫



出証番号 出証特2003-3107449

【書類名】 特許願

【整理番号】 N020781

【提出日】 平成14年11月29日

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 H01G 9/058

【発明者】

【住所又は居所】 愛知県犬山市大字前原字天道新田 大同メタル工業株式
会社内

【氏名】 尾崎 幸樹

【発明者】

【住所又は居所】 愛知県犬山市大字前原字天道新田 大同メタル工業株式
会社内

【氏名】 筒井 正典

【発明者】

【住所又は居所】 埼玉県和光市中央1丁目4番1号 株式会社本田技術研
究所内

【氏名】 岩井田 学

【発明者】

【住所又は居所】 埼玉県和光市中央1丁目4番1号 株式会社本田技術研
究所内

【氏名】 小山 茂樹

【発明者】

【住所又は居所】 埼玉県和光市中央1丁目4番1号 株式会社本田技術研
究所内

【氏名】 村上 顕一

【特許出願人】

【識別番号】 591001282

【氏名又は名称】 大同メタル工業株式会社

【特許出願人】

【識別番号】 000005326

【氏名又は名称】 本田技研工業株式会社

【代理人】

【識別番号】 100071135

【住所又は居所】 名古屋市中区栄四丁目 6 番 1 5 号 名古屋あおば生命ビル

【弁理士】

【氏名又は名称】 佐藤 強

【電話番号】 052-251-2707

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 008925

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9720639

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 電気二重層コンデンサ用分極性電極の製造方法

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 炭素質粉末、導電性助剤及びバインダを含む原料を混合、混練して混練物とし、この混練物を細粒化して成形材料を作成し、この成形材料を成形、圧延してシート状の電気二重層コンデンサ用分極性電極を製造する方法であって、

前記混練物を細粒化した成形材料として、その粒の形状は塊状で、粒径は $4.7 \mu\text{m}$ 以上でかつ $8.40 \mu\text{m}$ 未満の範囲のものをを用いるようにしたことを特徴とする電気二重層コンデンサ用分極性電極の製造方法。

【請求項 2】 前記成形材料として、粒径が $2.43 \mu\text{m}$ 未満の粒の割合が全体の 30% 以下のものをを用いるようにしたことを特徴とする請求項 1 記載の電気二重層コンデンサ用分極性電極の製造方法。

【請求項 3】 前記成形材料をシート状に成形する前において前記成形材料にバインダ用助剤を添加し混合する際に、それらを密閉された容器により混合するようにしたことを特徴とする請求項 1 記載の電気二重層コンデンサ用分極性電極の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、シート状の電気二重層コンデンサ用分極性電極の製造方法に関する。

【0002】

【従来の技術】

電気二重層コンデンサ（キャパシタ）は、大容量を有し、充放電サイクル特性にも優れていることから、自動車をはじめ、各種のバックアップ電源として使用が検討されている。自動車などのバックアップ電源として使用する場合には、静電容量の大きなものが必要となるため、このような電気二重層コンデンサに用いられる分極性電極としては、長尺なシート状のものが必要となる。そこで、この

種のシート状の分極性電極の製造方法として種々の方法が提案されている。

【0 0 0 3】

本件発明の課題とは直接関係はないが、次のような方法が公知である。炭素質粉末としての活性炭と、導電性助剤としてのカーボンブラックと、バインダとしてのフッ素樹脂（P T F E（ポリテトラフルオロエチレン））と、エタノールとをミキサにより混合して混合物を得る。この混合物を乾燥した後、ニーダにより混練して混練物を得る。次に、この混練物をミキサにより粒径が2 mm以下となるように粉碎し、この粉碎粒を並行ロールにより加圧成形してシート状成形体を得るというものである（例えば、特許文献1 参照）。

【0 0 0 4】

【特許文献1】

特開 2 0 0 1 - 3 5 7 5 6 号公報（段落番号 [0 0 2 9] 、 [0 0 3 0] ）

【0 0 0 5】

【発明が解決しようとする課題】

ところで、このようなシート状の分極性電極を製造する場合、そのシートに巣（空間部）や割れが発生し難く、引張強度の強いものが要望されている。

【0 0 0 6】

本発明は上記事情に鑑みてなされたものであり、その目的は、シート状に成形した際に巣や割れが発生することを極力防止でき、引張強度の強い分極性電極を製造することが可能な電気二重層コンデンサ用分極性電極の製造方法を提供することにある。

【0 0 0 7】

【課題を解決するための手段】

上記の目的を達成するために、請求項1の発明は、炭素質粉末、導電性助剤及びバインダを含む原料を混合、混練して混練物とし、この混練物を細粒化して成形材料を作成し、この成形材料を成形、圧延してシート状の電気二重層コンデンサ用分極性電極を製造する方法であって、前記混練物を細粒化した成形材料として、その粒の形状は塊状で、粒径は4 7 μ m以上でかつ8 4 0 μ m未満の範囲の

ものを用いるようにしたことを特徴とする。

【0008】

本発明者らは、シート状の分極性電極を製造する場合において、巣や割れが発生し難く、シート強度の強いものを製造するために、成形する前の成形材料の粒の形状や粒度の範囲などについて鋭意検討した結果、上記請求項1の条件を満たすことが好ましいことを見出した。

【0009】

まず、粒の形状は、ひげのない塊状であることが好ましい。ひげがあるような形状の場合、シート状に成形した際に、巣や割れが発生し易く、引張強度が小さくなり易い。これに対して、粒の形状がひげのない塊状である場合には、隙間ができ難いために巣や割れが発生し難く、引張強度を強くできる。

また、成形材料の粒径を $47\mu\text{m}$ 以上でかつ $840\mu\text{m}$ 未満の範囲とすることで、品質が安定し、巣や割れが一層発生し難くなり、引張強度を一層強くできる。粒径が $47\mu\text{m}$ 未満のものや $840\mu\text{m}$ 以上のものが入ると、品質が不安定になり、引張強度が低下し易くなる。

【0010】

ここで、分極性電極の原料のうち、炭素質粉末としては、主に活性炭が用いられるが、カーボンナノチューブ、繊維状炭素などを用いることもできる。導電性助剤としては、主にカーボンブラックが用いられる。バインダとしては、PTFEをはじめとするフッ素樹脂が好ましい。

【0011】

請求項2の発明は、混練物を細粒化した成形材料として、粒径が $243\mu\text{m}$ 未満の粒の割合が全体の30%以下のものを用いるようにしたことを特徴とする。粒径が $243\mu\text{m}$ 未満の比較的小さな粒の割合が30%を超えるようになると、シートの引張強度が低下するため、その割合を少なくすることが好ましい。

【0012】

請求項3の発明は、成形材料をシート状に成形する前において前記成形材料にバインダ用助剤を添加し混合する際に、それらを密閉された容器により混合するようにしたことを特徴とする。

粒状の成形材料とバインダ用助剤とを密閉された容器により混合することで、バインダ用助剤が飛ばず、その含有率を変化させることなく取り扱えるため、これらを極力均一に混合させることが可能となる。これにより、成形材料の品質が安定し、シート状の分極性電極を一層良好に製造することが可能となる。

この場合、バインダ用助剤としては、IPA（イソプロピルアルコール）、エタノール、メタノールなどのアルコール類の他、エーテル類、ケトン類などが挙げられる。

【0013】

【発明の実施の形態】

以下、本発明の実施の形態について図面も参照して説明する。

図1には、電気二重層コンデンサ用の電極シートを製造する際の製造工程が示されている。分極性電極を製造する際に使用する原料は、炭素質粉末として活性炭、導電性助剤としてカーボンブラック、バインダとしてPTFEの粉末、バインダ用助剤として液体状のIPA（イソプロピルアルコール）である。原料の配合割合は重量%で、活性炭を80%、カーボンブラックを10%、PTFEを10%とし、IPAは、PTFEと同重量の10%とする。

【0014】

まず、各原料の計量を行う。次に、活性炭とカーボンブラックをミキサの容器内に投入し、回転する攪拌羽根によりこれらを混合する一次混合を行う。これにより、活性炭とカーボンブラックとが極力均一に混合される。

そして、予めPTFEとIPAとを混合してPTFEを膨潤させたものを、上記ミキサの容器内に投入し、これと上記一次混合したものとを混合する二次混合を行う。これにより、活性炭とカーボンブラックとPTFEとが混合されると共に、PTFEが繊維化して活性炭とカーボンブラックとが絡められる。

【0015】

次に、二次混合された混合物を混練機（ニーダ）の容器内に収容し、蓋をして加圧しながら、ブレードを回転させることにより混練を行う。この混練により、混合物は粘土状に混練されると共に、PTFEが一層繊維化して活性炭とカーボンブラックとが絡められるようになる。このとき、混練機の容器、蓋及びブレー

ドは、例えば 9 0 ℃ となるように温度制御する。

次に、上記混練機で混練された混練物をキザミ機の容器内に収容し、回転するキザミ刃によりきざんで細粒化する。このとき、図 2 に示すように、きざまれた粒 1 の形状は、ひげのない塊状となるようにすることが好ましい。ちなみに、図 3 は、粒 2 が、ひげ状の部分の有するもので、好ましくない例である。

【 0 0 1 6 】

次に、このきざまれた粒をふるいにかけて分級する。このとき、ふるい用のメッシュとしては # 2 0 0 （粒径が 4 7 μ m 未満のものが落下）～ # 2 0 （粒径が 8 4 0 μ m 未満のものが落下）の複数種類を用いて分級し、粒径としては、4 7 μ m 以上でかつ 8 4 0 μ m 未満の範囲のものを用いる。これにより得られた粒が成形材料となる。成形材料の粒度分布については後述する。

次に、カレンダー成形前処理工程において、図 4 に示すようなミキサ 3 の容器 4 内に、上記成形材料を収容すると共に、原料（活性炭とカーボンブラックと P T F E）の合計重量に対して 7 0 % の I P A を添加して、これらを混合する。この容器 4 は、ほぼ円筒状をなすと共に密閉されるようになっていて、ローラ 5 により円周方向に回転されると共に、台 6 ごと上下方向へ揺動されるようになっている。このミキサ 3 による混合により、密閉された容器 4 内に収容された粒状の成形材料と液体状の I P A とが極力均一となるように混合される。

【 0 0 1 7 】

次に、カレンダー成形工程において、上記ミキサ 3 により混合された成形材料の混合物を、カレンダー成形機のホッパに投入し、この混合物を 2 本のローラ間を通してシート状に成形する。成形されたシート状成形体は、巻取りローラにより巻き取る。このとき、シート状成形体の厚さは例えば 2 0 0 μ m とする。

【 0 0 1 8 】

次に、ロール圧延工程において、上記シート状成形体を、2 本のローラ間を通して圧延する。このロール圧延工程を複数回行うことにより、所定の厚さ例えば 1 6 0 μ m のシート状電極が形成され、このシート状電極が分極性電極となる。このロール圧延の最終工程において、シート状電極の幅方向の両端部をカッタにより切断する。

ここで、図 5 には、シート状電極の表面を拡大して示す模式図が示されている。この図 5 において、活性炭 7 と、これよりも小さなカーボンブラック 8 とが、繊維状をなす P T F E 9 により絡められている状態がわかる。

【 0 0 1 9 】

次に、ラミネート工程において、圧延された上記シート状電極を、集電極となるアルミ箔に貼り合わせる。貼り合わせられた電極シートは、巻取りローラに巻き取る。

次に、乾燥工程において、シート状電極に含まれていた水分及び I P A の残りが除去される。尚、必要により真空乾燥を行うこともできる。

【 0 0 2 0 】

さて、本発明者らは、上記粒状の成形材料の粒度分布と、シート状電極にした状態での密度と引張強度との関係について調べるため、次のようなことを行った。まず、下記の表 1 に示すように、成形材料として、粒度分布が異なる実施例 1 ～ 5 及び比較例 1 のものを用意した。この場合、実施例 1 ～ 5 で使用する粒の形状は、すべてひげのない塊状のもの（図 2 参照）で、比較例 1 で使用する粒の形状は、ひげのあるもの（図 3 参照）で、粒径は、上述したように $47\mu\text{m}$ 以上でかつ $840\mu\text{m}$ 未満の範囲のもので、粒度分布が異なっている。各実施例 1 ～ 5 及び比較例 1 とも、合計重量はすべて 500g である。

【 0 0 2 1 】

【表 1】

| メッシュ | 粒径(μm) | 実施例1 | | 実施例2 | | 実施例3 | | 実施例4 | | 実施例5 | | 比較例1 | |
|-----------|---------------------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|
| | | 割合(%) | 重さ(g) | 割合(%) | 重さ(g) | 割合(%) | 重さ(g) | 割合(%) | 重さ(g) | 割合(%) | 重さ(g) | 割合(%) | 重さ(g) |
| #24~#20 | 728~840 | 27 | 135 | 12.5 | 62.5 | 2 | 10 | 1 | 5 | 26 | 130 | 1 | 5 |
| #30~#24 | 637~728 | 20 | 100 | 12.5 | 62.5 | 4 | 20 | 7 | 35 | 20 | 100 | 7 | 35 |
| #32~#30 | 544~637 | 15 | 75 | 12.5 | 62.5 | 11 | 55 | 8 | 40 | 11 | 55 | 8 | 40 |
| #40~#32 | 445~544 | 12 | 60 | 12.5 | 62.5 | 20 | 100 | 10 | 50 | 4 | 20 | 10 | 50 |
| #60~#40 | 343~445 | 10 | 50 | 12.5 | 62.5 | 26 | 130 | 12 | 60 | 2 | 10 | 12 | 60 |
| #70~#60 | 243~343 | 8 | 40 | 12.5 | 62.5 | 20 | 100 | 15 | 75 | 6 | 30 | 15 | 75 |
| #110~#70 | 141~243 | 7 | 35 | 12.5 | 62.5 | 11 | 55 | 20 | 100 | 13 | 65 | 20 | 100 |
| #200~#110 | 47~141 | 1 | 5 | 12.5 | 62.5 | 6 | 30 | 27 | 135 | 18 | 90 | 27 | 135 |
| 合計 | | 100(%) | 500(g) | 100(%) | 500(g) | 100(%) | 500(g) | 100(%) | 500(g) | 100(%) | 500(g) | 100(%) | 500(g) |

【0022】

なお、ふるい用のメッシュ（J I Sメッシュ）は、数字が大きいほど目が細くなる。表 1 において、メッシュの欄の例えば「# 2 4 ~ # 2 0」という表示は、# 2 0 のメッシュは通過するが、# 2 4 のメッシュは通過しない範囲のものであることを示している。「# 3 0 ~ # 2 4」以下の表示も同様なことを表示している。また、粒径の欄の例えば「7 2 8 ~ 8 4 0」という表示は、粒径が7 2 8 μ m以上で、8 4 0 μ m未満の範囲であることを示している。「6 3 7 ~ 7 2 8」以下の表示も同様なことを表示している。

【 0 0 2 3 】

これら各実施例 1 ~ 5 及び比較例 1 の成形材料を用いて、シート状に成形、圧延してシート状電極を作成し、その作成したシート状電極の密度を測定すると共に、引張試験を行った結果を表 2 に示す。引張試験の試験条件は、次の通りである。すなわち、試験片は、幅 1 5 mm、厚さ 0 . 1 4 mm、長さ 1 0 0 mmの板状である。この板状試験片の両端部をチャックし、上下方向の 1 軸に 5 mm / m i n の速度で引張試験を行った。

【 0 0 2 4 】

【表 2】

| | 密度(g/cm ³) | 引張強度(MPa) |
|------|------------------------|-----------|
| 実施例1 | 0.727 | 0.35 |
| 実施例2 | 0.725 | 0.33 |
| 実施例3 | 0.726 | 0.32 |
| 実施例4 | 0.723 | 0.26 |
| 実施例5 | 0.728 | 0.27 |
| 比較例1 | 0.700 | 0.20 |

【 0 0 2 5 】

この結果について検討してみる。密度については、実施例 1 ~ 5 でほとんど差

はないが、比較例 1 は、実施例 1～5 に比べて小さくなっている。これは、成形材料の粒の形状の違いによるものであると考えられる。すなわち、ひげのない塊状の粒の場合には隙間ができ難いが、ひげのある粒の場合には、隙間ができやすいため、密度が小さくなると考えられる。

【0026】

引張り強度については、連続的にロール圧延及びラミネート工程を行うためには 0.25 MPa 以上の引張強度が好ましいが、実施例 1～5 は、すべて 0.26 MPa 以上あり、その基準は上回っている。これに対して、比較例 1 は、0.20 MPa で、その基準を下回っている。従って、成形材料として、粒の形状がひげのない塊状で、粒径が $47\mu\text{m}$ 以上でかつ $840\mu\text{m}$ 未満の範囲のものをを用いることにより、引張強度の強い分極性電極を製造することが可能となる。また、これら各実施例 1～5 においては、シートにした際に巣や割れも発生しなかった。

【0027】

実施例 1～5 を更に検討してみると、引張強度について、実施例 1, 2, 3 は、いずれも 0.32 MPa 以上となっているのに対し、実施例 4, 5 は、0.27 MPa 以下となっていて、実施例 1～3 に比べて小さくなっている。この原因を検討したところ、成形材料の粒度分布に関係があることがわかった。すなわち、各実施例 1～5 のうち、粒径が小さいもの ($243\mu\text{m}$ 未満～ $47\mu\text{m}$ 以上) の割合が、実施例 4 では 47% (20%+27%)、実施例 5 では 31% (13%+18%) と高くなっている。これに対して、実施例 1 では、粒径が $243\mu\text{m}$ 未満～ $47\mu\text{m}$ 以上の割合が 8% (7%+1%)、実施例 2 では、同範囲の割合が 25% (12.5%+12.5%)、実施例 3 では、同範囲の割合が 17% (11%+6%) となっていて、いずれも 30% よりも低くなっている。この結果から、シートの引張強度の点で、成形材料としては、粒径が $243\mu\text{m}$ 未満～ $47\mu\text{m}$ 以上の割合が 30% 以下のものをを用いることが、より好ましいということができる。

【0028】

また、上記した実施の形態においては、成形材料をシート状に成形する前にお

いて、粒状の成形材料に I P A を添加し混合する際に、それらを密閉された容器 4 により混合することで、I P A の含有率を変化させることなく取り扱えるため、これらを極力均一に混合させることが可能となる。これにより、成形材料の品質が安定し、シート状電極を一層良好に製造することが可能となる。

【図面の簡単な説明】

【図 1】 本発明の実施の形態を示すもので、電気二重層コンデンサ用の電極シートを製造する際の製造工程を説明する図

【図 2】 混練物をきざんだ後の塊状の粒を示す図

【図 3】 ひげのある粒を示す図

【図 4】 ミキサの側面図

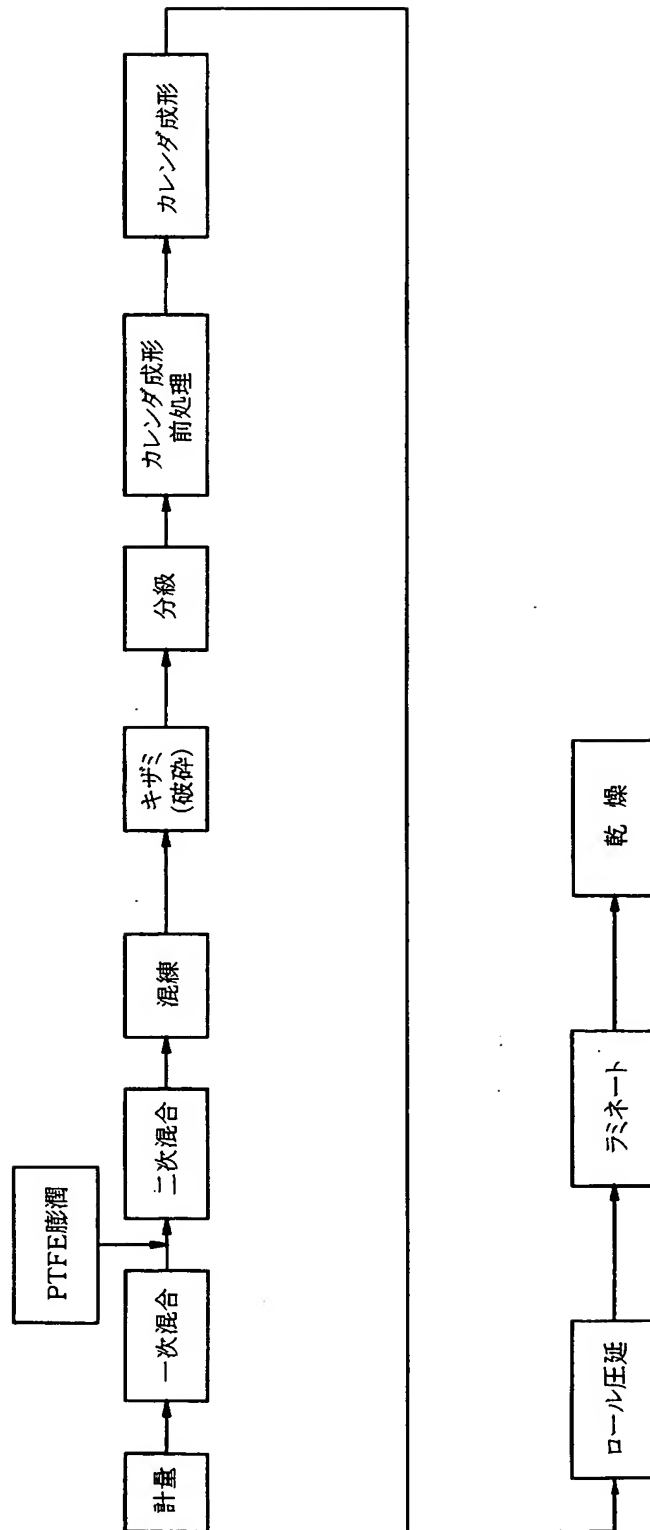
【図 5】 シート状電極の表面の模式図

【符号の説明】

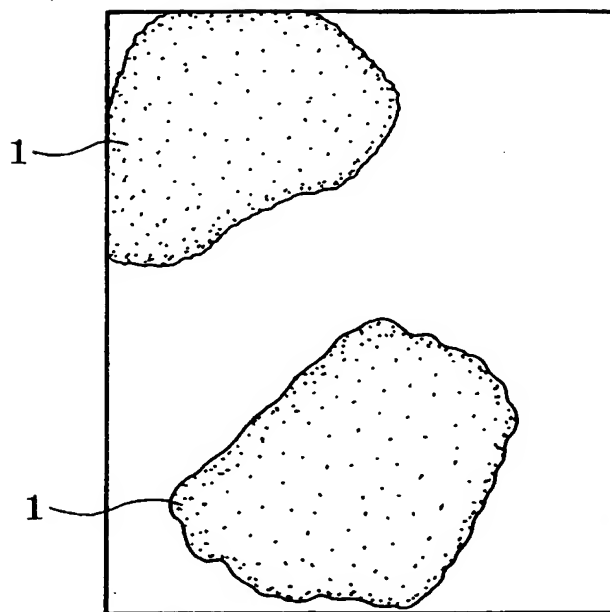
1 はひげのない塊状の粒、2 はひげのある粒、3 はミキサ、4 は密閉された容器、7 は活性炭（炭素質粉末）、8 はカーボンプラック（導電性助剤）、9 は P T F E （バインダ）を示す。

【書類名】 図面

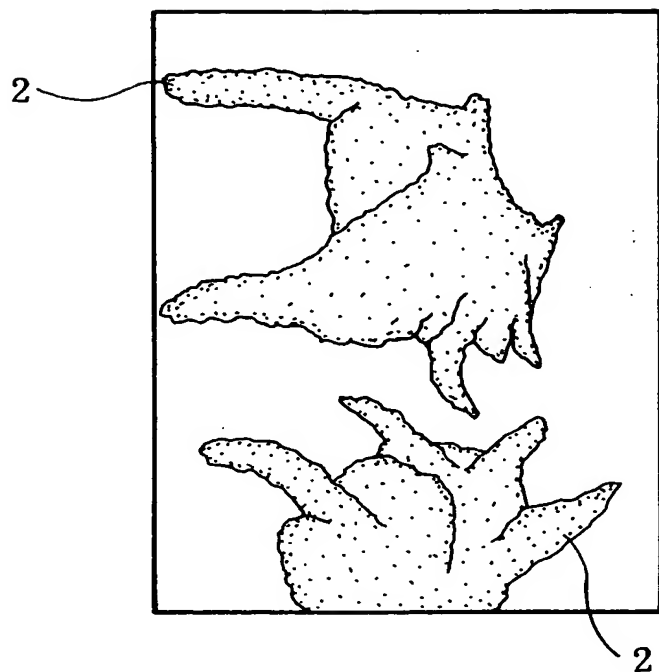
【図 1】



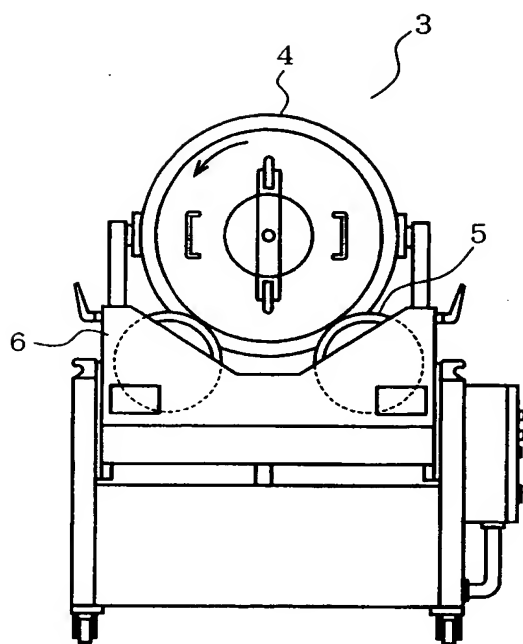
【図 2】



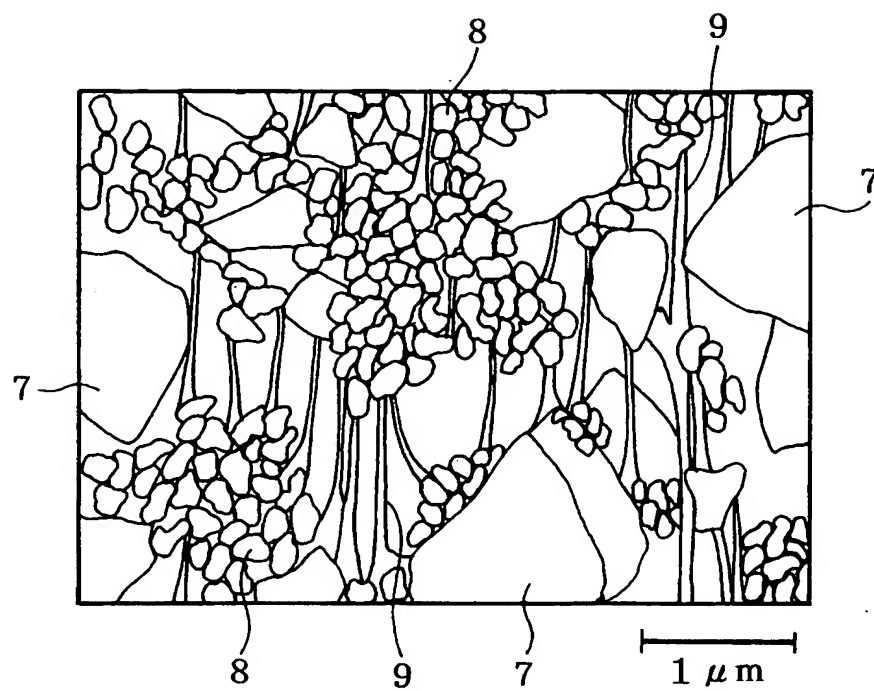
【図 3】



【図 4】



【図 5】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 シート状に成形した際に巣や割れが発生することを極力防止でき、引張強度の強い分極性電極を製造する。

【解決手段】 活性炭、カーボンブラック及び P T F E を含む原料を混合、混練して混練物とし、この混練物を細粒化して成形材料を作成し、この成形材料を成形、圧延してシート状電極を製造する方法において、混練物を細粒化した成形材料として、その粒の形状はひげのない塊状で、粒径は $4.7 \mu\text{m}$ 以上でかつ $8.4 \mu\text{m}$ 未満の範囲のものをを用いるようにした。

【選択図】 図 1

特願 2 0 0 2 - 3 4 7 9 3 9

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [5 9 1 0 0 1 2 8 2]

1. 変更年月日 1 9 9 0 年 1 2 月 2 7 日
[変更理由] 新規登録
住 所 愛知県名古屋市北区猿投町 2 番地
氏 名 大同メタル工業株式会社
2. 変更年月日 2 0 0 2 年 9 月 1 7 日
[変更理由] 住所変更
住 所 愛知県名古屋市中区栄二丁目 3 番 1 号 名古屋広小路ビルヂン
グ 1 3 階
氏 名 大同メタル工業株式会社



特願 2 0 0 2 - 3 4 7 9 3 9

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[0 0 0 0 0 5 3 2 6]

1. 変更年月日

1 9 9 0 年 9 月 6 日

[変更理由]

新規登録

住 所

東京都港区南青山二丁目 1 番 1 号

氏 名

本田技研工業株式会社

